

①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**  
⑪ **DE 37 08 957 A 1**

⑥1 Int. Cl. 4:  
**C01 B 17/04**  
B 01 J 8/02

②1 Aktenzeichen: P 37 08 957.9  
②2 Anmeldetag: 19. 3. 87  
④3 Offenlegungstag: 6. 10. 88

**Behördeneigentum**

⑦1 Anmelder:  
Linde AG, 6200 Wiesbaden, DE

⑦2 Erfinder:  
Marold, Freimut, 8014 Neubiberg, DE; Heisel,  
Michael, Dr., 8023 Pullach, DE; Bräutigam, Max, 8221  
Seon, DE

⑤4 Reaktor zur katalytischen Umsetzung von in einem Gasstrom enthaltenem  $H_2S$  und  $SO_2$  zu elementarem Schwefel

Es wird ein Reaktor mit einem Katalysatorbett zur katalytischen Umsetzung von in einem Gasstrom enthaltenem  $H_2S$  und  $SO_2$  zu elementarem Schwefel beschrieben. Um beim Betrieb des Reaktors unterhalb des Schwefeltaupunktes bzw. Schwefelfestpunktes eine möglichst hohe Gleichmäßigkeit beim Kühlen oder Anwärmen der Katalysatorschüttung im Adsorptions- oder Regenerierfall zu erreichen, wird der Reaktor zumindest teilweise innen gekühlt bzw. beheizt und im Katalysatorbett in zumindest einem Teilbereich mindestens eine Kühl/Heizschlange angeordnet. Vorgesehen ist dabei auch, daß das Katalysatorbett in mehrere Teilbetten unterteilt ist, die unterschiedliche Katalysatoren enthalten.

DE 37 08 957 A 1

## Patentansprüche

1. Reaktor zur katalytischen Umsetzung von in einem Gasstrom enthaltenem  $\text{H}_2\text{S}$  und  $\text{SO}_2$  zu elementarem Schwefel mit einem Katalysatorbett, dadurch gekennzeichnet, daß der Reaktor zumindest teilweise innen gekühlt bzw. beheizt ausgebildet und in dem Katalysatorbett in zumindest einem Teilbereich mindestens eine Kühl/Heizschlange angeordnet ist.

2. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Katalysatorbett in eine quasi adiabatische Zone ohne Kühlwirkung und eine quasi isotherme Zone mit Kühlwirkung unterteilt ist.

3. Reaktor nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Reaktor nach Art eines gewickelten Rohrbündelwärmetauschers ohne Wicklungskernrohr ausgebildet ist, wobei die gewickelten Rohre als Kühl/Heizschlangen für das Kühl/Heizmedium dienen und der verbleibende Zwischenraum mit Katalysatormasse ausgefüllt ist.

4. Reaktor nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Kühl/Heizschlangen einer Ebene spiralförmig angeordnet sind.

5. Reaktor nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Kühl/Heizschlangen einer Ebene schlangenförmig angeordnet sind.

6. Reaktor nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Katalysatorbett in mindestens zwei Teilbetten unterteilt ist, die jeweils zwischen zwei gasdurchlässigen Wänden angeordnet sind, wobei auf den gasdurchlässigen Wänden zumindest teilweise Kühl/Heizschlangen installiert sind.

7. Reaktor nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die gasdurchlässigen Wände als Lochbleche oder Metallgitter ausgebildet sind.

8. Reaktor nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Teilbetten parallel zueinander, gleichmäßig verteilt über den Reaktorquerschnitt angeordnet sind.

9. Reaktor nach Anspruch 6 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Teilbetten unterschiedliche Katalysatoren enthalten.

10. Reaktor nach Anspruch 6 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die parallelen Teilbetten über ein sämtliche Teilbetten abdeckendes gasundurchlässiges Blech an ihren Stirnseiten miteinander zu einer Einheit verbunden sind und daß auf der einen Stirnseite die Gaszuleitung bis in dieses Blech eingeführt ist.

11. Reaktor nach Anspruch 6 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen den einzelnen Teilbetten Leitbleche installiert sind.

12. Reaktor nach Anspruch 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil des Katalysatorbettes als eine adiabatische, für die Hydrolyse von  $\text{COS}$  und/oder  $\text{CS}_2$  zu  $\text{H}_2\text{S}$  aktive Katalysatorschicht ausgebildet ist.

13. Reaktor nach Anspruch 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß das Katalysatorbett für die katalytische Oxidation von  $\text{H}_2\text{S}$  zu  $\text{SO}_2$  und/oder Elementarschwefel aktiv ist.

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft einen Reaktor zur katalytischen Umsetzung von in einem Gasstrom enthaltenem

$\text{H}_2\text{S}$  und  $\text{SO}_2$  zu elementarem Schwefel mit einem Katalysatorbett.

Bei der Umsetzung von  $\text{H}_2\text{S}$  und  $\text{SO}_2$  zu elementarem Schwefel handelt es sich um eine exotherme Reaktion, d.h. je mehr Wärme abgeführt wird, desto weiter liegt das Reaktionsgleichgewicht auf Seiten der Schwefelbildung. Bisher war es beispielsweise üblich, diese katalytische Reaktion in einer Serie von quasi adiabaten Reaktoren mit Zwischenkühlung durchzuführen.

Um besonders hohe Schwefelausbeuten zu erzielen (bis über 99%), muß man entsprechend weit runterkühlen. Kühlt man dabei bis unter den Schwefeltaupunkt bzw. Schmelzpunkt, so setzt sich der Katalysator mit flüssigem bzw. festem Schwefel zu.

Der abgeschiedene flüssige bzw. feste Schwefel inaktiviert den Katalysator und muß deshalb wieder entfernt werden.

Das geschieht dadurch, daß das Katalysatorbett angeheizt wird und der Schwefel somit wieder verdampft. Die Aufheizung wird beispielsweise erreicht durch Erwärmen des Gasstromes vor Eintritt in den Reaktor in einem Gas-Gas-Wärmetauscher. Der dampfförmige Schwefel wird in einem nachfolgenden Kondensator abgeschieden.

Um einen wie vorstehend beschriebenen Prozeß kontinuierlich fahren zu können, sind mindestens zwei parallel geschaltete Reaktoren mit Katalysatorbetten erforderlich, von denen jeweils einer unterhalb des Schwefeltaupunktes bzw. unterhalb des Schmelzpunktes betrieben wird, der andere sich in der Regenerierphase befindet.

Bei der Abkühlung unter den Schmelzpunkt setzen sich die quasi adiabaten katalytischen Reaktoren von außen nach innen zu, so daß in dem im Innern verbleibenden freien Querschnitt nahezu keine Reaktion mehr stattfindet, da die Verweilzeit des Gases zu gering wird. Denn bei gleichem Durchsatz und sich verengender Querschnittsfläche erhöht sich die Gasgeschwindigkeit erheblich.

Somit ist es bisher nicht möglich, mit diesen Reaktoren einen kontinuierlichen und gleichzeitig rentablen Betrieb aufrecht zu erhalten. In diesem Zusammenhang ist es außerdem von Nachteil, daß der feste Schwefel ein sehr gutes Dämm- bzw. Isoliermaterial ist, so daß die Wärmeabfuhr drastisch verschlechtert ist, was zusätzlich die exotherme Umsetzung von  $\text{H}_2\text{S}$  und  $\text{SO}_2$  zu Elementarschwefel negativ beeinflusst.

Weiterhin nachteilig ist, daß kein gleichmäßiges Kühlen oder Anwärmen der Katalysatorschüttung in adiabaten Reaktoren möglich ist. Auch ist die Gleichmäßigkeit der Durchströmung nicht optimal und somit der Druckabfall über der Schüttung unerwünscht hoch.

Überdies sind in der Regel mehr als zwei Reaktoren notwendig, da bei Verwendung von weniger und größeren Reaktoren eine ausreichende Wärmeabfuhr auf wirtschaftliche Weise nicht mehr gewährleistet ist.

Es ist daher Aufgabe der Erfindung, einen Reaktor der eingangs genannten Art so auszugestalten, daß die Umsetzung von  $\text{H}_2\text{S}$  und  $\text{SO}_2$  zu Elementarschwefel auch bei Unterschreitung des Schmelzpunktes großtechnisch und kostengünstig durchgeführt werden kann, daß der apparative Aufwand und damit die Investitionskosten sowie die Betriebskosten verringert werden.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß der Reaktor zumindest teilweise innen gekühlt bzw. beheizt ausgebildet und in dem Katalysatorbett in zumindest einem Teilbereich mindestens eine Kühl/Heiz-

schlange angeordnet ist.

Grundgedanke der Erfindung ist, daß zur Regenerierung des durch absorbierten Schwefel desaktivierten Katalysators eine möglichst gleichmäßige Anwärmmung des Katalysatorbettes gewährleistet sein soll. Im Gegenzug soll eine optimale Wärmeabfuhr bei der katalytischen Umsetzung zur Begünstigung der exothermen Reaktion stattfinden. Beides wird durch die Direktbeheizung bzw. Kühlung des Katalysatorbettes möglich.

Überdies ist es nicht mehr notwendig, mehrere Reaktoren zu verwenden, da die direkte Beheizung bzw. Kühlung des Katalysatorbettes eine kostengünstige Dimensionierung des Reaktors für nahezu jeden gewünschten Gasdurchsatz zuläßt. Folglich können die Investitionskosten gesenkt werden, und der Betrieb wird einfacher.

Mit Vorteil wird das Katalysatorbett in eine quasi adiabatische Zone ohne Kühlwirkung und eine quasi isotherme Zone mit Kühlwirkung unterteilt. Dies ermöglicht die Durchführung der häufig erforderlichen Hydrolyse von COS/CS<sub>2</sub> zu H<sub>2</sub>S in der quasi adiabaten Vorschicht, so daß kein weiterer Reaktor hierfür benötigt wird. Außerdem wirkt die quasi adiabate Vorschicht gleichzeitig als eine Art Tiefenfilter, d.h. eventuelle Verunreinigungen des Gasstromes mit Feststoffpartikeln, wie beispielsweise Staub aus einer vorangegangenen Verbrennung, werden in dieser Schicht abgeschieden.

Besonders günstig ist es, den Reaktor nach Art eines gewickelten Rohrbündelwärmetauschers ohne Wicklungskernrohr auszubilden, wobei die gewickelten Rohre als Kühl/Heizschlangen für das Kühl/Heizmedium dienen, und der verbleibende Zwischenraum mit Katalysatormasse ausgefüllt ist. Als einfaches und billiges Kühl- bzw. Heizmedium bieten sich Kesselspeisewasser bzw. Hochdruckdampf an.

Durch die gleichmäßig über der Höhe verteilten Kühl/Heizschlangen verringert sich die mechanische Beanspruchung des Katalysators beim Einfüllen, da die Fallhöhe geringer ist.

Besonders vorteilhaft ist es, wenn die Kühl/Heizschlangen einer Ebene spiral- oder schlangenförmig angeordnet sind. Dabei bietet die spiralförmige Verlegung Kühl/Heizschlangen die Möglichkeit, das Kühl/Heizmedium in die äußerste Schlange oder in die innerste Schlange aufzugeben, womit man je nach Betriebszustand des Reaktors — beispielsweise Verlegung des Reaktors, ausgehend von der Reaktoraußenseite — optimal aufheizen bzw. abkühlen kann.

Ferner ist es aufgrund vorstehend genannter Kühl/Heizschlangenordnung möglich, je nach Bedarf ohne großen Aufwand an Regelungstechnik nur einzelne Schichten des Katalysatorbettes zu kühlen bzw. zu beheizen.

Überraschenderweise hat sich außerdem gezeigt, daß die Kühl/Heizschlangen, die spiral- bzw. schlangenförmig verlegt sind, als eine Art Träger für den Katalysator dienen. Dadurch wird dieser durch die wechselnden Temperaturen im Reaktor während des Anfahrens und des Normalbetriebes wesentlich weniger beansprucht sowohl thermisch als auch mechanisch. Auf diese Weise ist eine erheblich verlängerte Lebensdauer des Katalysators erreichbar, was günstig für die Betriebskosten ist und verringerte Stillstandszeiten der Anlage zur Folge hat.

In einer weiteren äußerst vorteilhaften Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Reaktors ist es vorgesehen, das Katalysatorbett in mindestens zwei Teilbetten zu unterteilen, die jeweils zwischen zwei gasdurchlässigen Wän-

den angeordnet sind, wobei auf den gasdurchlässigen Wänden zumindest teilweise Kühl/Heizschlangen installiert sind. Zweckmäßigerweise sind dabei die gasdurchlässigen Wände als Lochbleche oder Metallgitter ausgebildet.

Um möglichst günstige, d.h. druckverlustarme, Strömungsverhältnisse im Reaktor zu erhalten, ist es besonders günstig, wenn die Teilbetten parallel zueinander, gleichmäßig verteilt über den Reaktorquerschnitt angeordnet sind.

Je nach Zusammensetzung des Gasstromes ist es von Vorteil, wenn die Teilbetten unterschiedliche Katalysatoren enthalten. So zum Beispiel Katalysatoren für die COS/CS<sub>2</sub>-Hydrolyse und die Direktoxidation von H<sub>2</sub>S zu SO<sub>2</sub> und/oder S oder die Claus-Reaktion.

Für eine weitere günstige Beeinflussung der Strömungsverhältnisse ist erfindungsgemäß vorgesehen, daß die parallelen Teilbetten über ein sämtliche Teilbetten abdeckendes gasundurchlässiges Blech an ihren Stirnseiten miteinander zu einer Einheit verbunden sind und daß auf der einen Stirnseite die Gaszuleitung bis in dieses Blech hineingeführt ist.

Eine andere Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Reaktors sieht vor, daß zwischen den einzelnen Teilbetten Leitbleche installiert sind.

Mit Vorteil ist außerdem ein Teil des Katalysatorbettes als eine adiabatische, für die Hydrolyse von COS und/oder CS<sub>2</sub> zu H<sub>2</sub>S aktive Katalysatorschicht ausgebildet.

Für eine möglichst von der Gaszusammensetzung unabhängige Umsetzung ist es erfindungsgemäß vorgesehen, daß das Katalysatorbett für die katalytische Oxidation von H<sub>2</sub>S zu SO<sub>2</sub> und/oder Elementarschwefel aktiv ist.

Im Falle sehr großer Gasdurchsetzung und damit entsprechend großer Reaktoren kann es zweckmäßig sein, liegende Reaktoren einzusetzen. Dadurch kann man das zu reinigende Gas an mehreren Stellen gleichzeitig aufgeben, was eine gute Gasverteilung bewirkt und außerdem hat man eine sehr viel geringere Schüttungshöhe. Beides zusammen wirkt sich günstig auf den Druckverlust aus.

Insgesamt bietet der erfindungsgemäße Reaktor mit seinen Ausgestaltungen den Vorteil, daß er einen niedrigen Druckverlust, einen guten Wärmeübergang sowie eine gute Gasverteilung aufweist. Durch die Aufteilung des Katalysatorbettes in mehrere Teilbetten erhält man darüber hinaus quasi eine beliebige Schütthöhe bei gleichzeitigem minimalen Druckverlust.

Weiterhin zeichnet sich der erfindungsgemäße Reaktor durch eine gute Regelbarkeit aus, womit sich Inbetrieb — sowie Außerbetriebnahme vereinfachen und die Betriebssicherheit sich erhöht. Insbesondere ist beim erfindungsgemäßen Reaktor die Einstellung eines optimalen Temperaturprofils speziell für die Aufheizung des Katalysators bei der Regenerierung im Schwefeltaupunkt- bzw. Schwefelfestpunktbetrieb möglich.

Der erfindungsgemäße Reaktor ist überall da einsetzbar, wo H<sub>2</sub>S und SO<sub>2</sub> katalytisch zu Elementarschwefel umgesetzt werden sollen, insbesondere aber bei Anlagen die unterhalb des Schwefeltaupunktes bzw. des Schwefelfestpunktes arbeiten.

Nachfolgend sei die Erfindung anhand der in den Figuren schematisch dargestellten Ausführungsbeispiele erläutert.

Hierbei zeigen:

Fig. 1 einen erfindungsgemäßen Reaktor mit einem Katalysatorbett,

Fig. 2 einen erfindungsgemäßen Reaktor mit einem in mehrere Teilbetten aufgeteilten Katalysatorbett,

Fig. 3 und 4 erfindungsgemäße Anordnung der Kühl/Heizschlangen.

Gemäß Fig. 1 wird durch einen Rohrstutzen 1 das zu 5  
reinigende Gas, welches beispielsweise aus einer Claus-  
Anlage stammt, in den Reaktor 2 geleitet, wo aufgrund  
der Strömungsverhältnisse eine Aufteilung des Gasstro-  
mes stattfindet. Somit tritt der Gasstrom dann durch  
einen Rost 3, welcher in der Mitte als gasundurchlässige 10  
runde Platte mit einem Durchmesser in einer Größen-  
ordnung von mehr als 600 mm ausgebildet ist, in ein  
Katalysatorbett ein. Das Katalysatorbett 4 dient dabei  
als quasi adiabate Vorschicht, in der die Hydrolyse von  
eventuell vorhandenem COS bzw. CS<sub>2</sub> zu H<sub>2</sub>S stattfin- 15  
det.

Über einen weiteren Rost 5 gelangt das Gas in ein  
Katalysatorbett 6, das mittels Kühl/Heizschlangen 7 in-  
nen beheiz- bzw. kühlbar ist.

Die gesamte Katalysatorschüttung wird von einem 20  
Rost 9 getragen. Durch diesen hindurchtretend und sich  
vermischend und über einen Rohrstutzen 10 wird das  
gereinigte Gas aus dem Reaktor entfernt.

Angeschweißt an die gasundurchlässige Platte in Rost  
3 verläuft ein Rohr 8 über der gesamten Höhe der 25  
Schüttung, so daß auch die Roste 5 und 9 mit dem Rohr  
8 verbunden sind.

Gemäß Fig. 2 tritt ein zu reinigender Gasstrom über  
einen Rohrstutzen 1 in den Reaktor 2 ein. Dabei wird  
das Gas über ein Rohr 3, welches mit einer gasundurch- 30  
lässigen Platte 4 verbunden ist, zentrisch zwischen meh-  
reren Katalysatorteilbetten 5, 6 aufgegeben.

In diesem Fall ist das Katalysatorteilbett 5 quasi adia-  
bat und das Katalysatorteilbett 6 quasi isotherm ausge-  
bildet. Zur Beheizung bzw. Kühlung des Katalysatorteil- 35  
bettes 6 dienen die Kühl/Heizschlangen 7.

Das Gas strömt von innen nach außen zuerst durch  
das Katalysatorteilbett 5, dann durch das Katalysator-  
teilbett 6 und weiter sich vermischend zum unteren En-  
de des Reaktors, wo es über Rohrstutzen 8 abgezogen 40  
wird.

Fig. 3 und 4 zeigen erfindungsgemäße Anordnungen  
der Kühl/Heizschlangen einer Ebene. Die Bezugszei-  
chen haben in beiden Figuren dieselbe Bedeutung.

Mit dem Reaktormantel 1 ist ein Stützkreuz 2, wel- 45  
ches die Kühl/Heizschlangen 3 einer Ebene trägt, ver-  
bunden.

50

55

60

65

- Leerseite -

(H1699, H1704)

H87/29

Num.:

Int. Cl.:

Anmeldetag:

Offenlegungstag:

Fig.: 13:14

37 08 957

C 01 B 17/04

19. März 1987

6. Oktober 1988

3708957

NACHGEREICHT

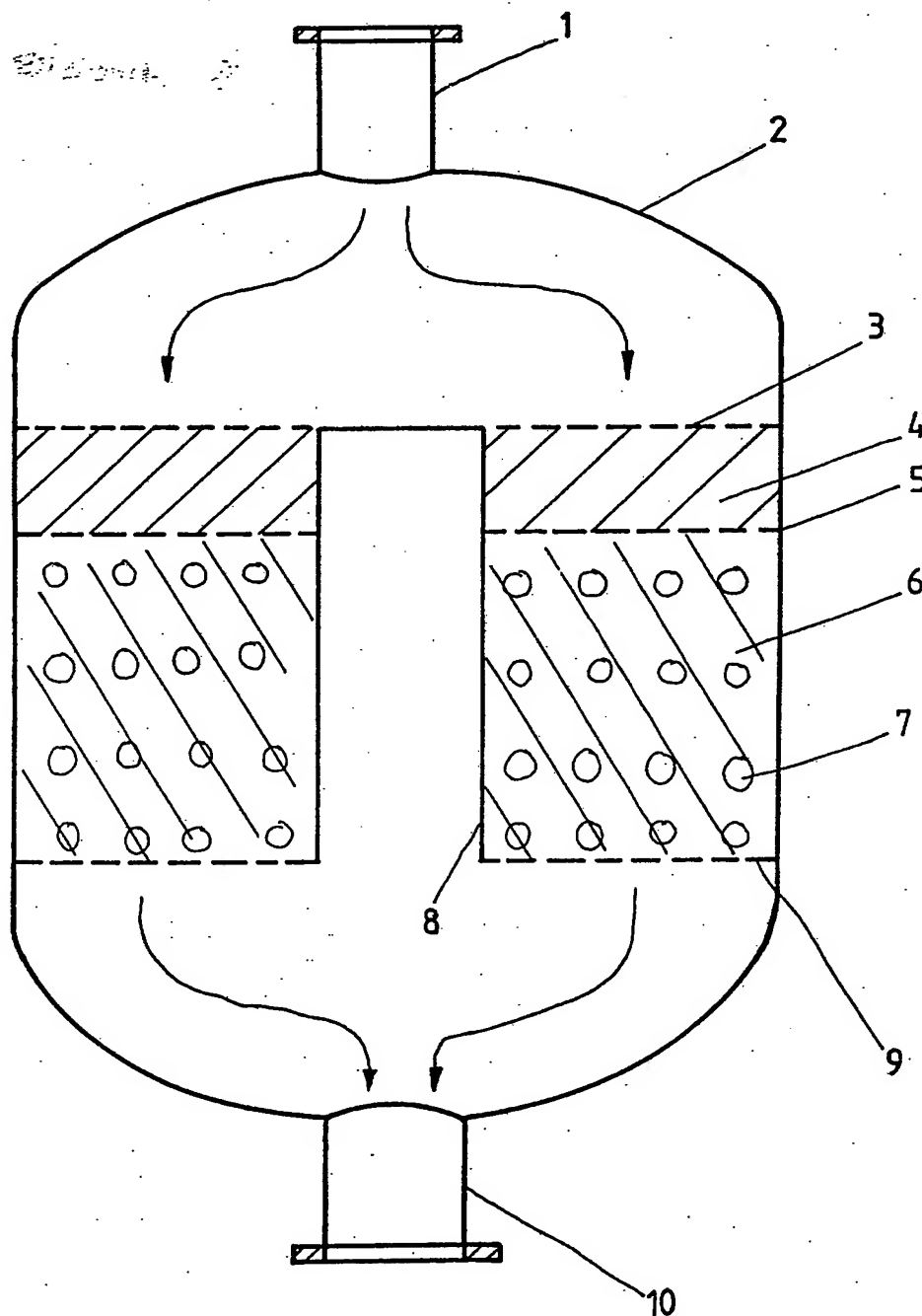


Fig.1

NACHGEREICHT

3708957

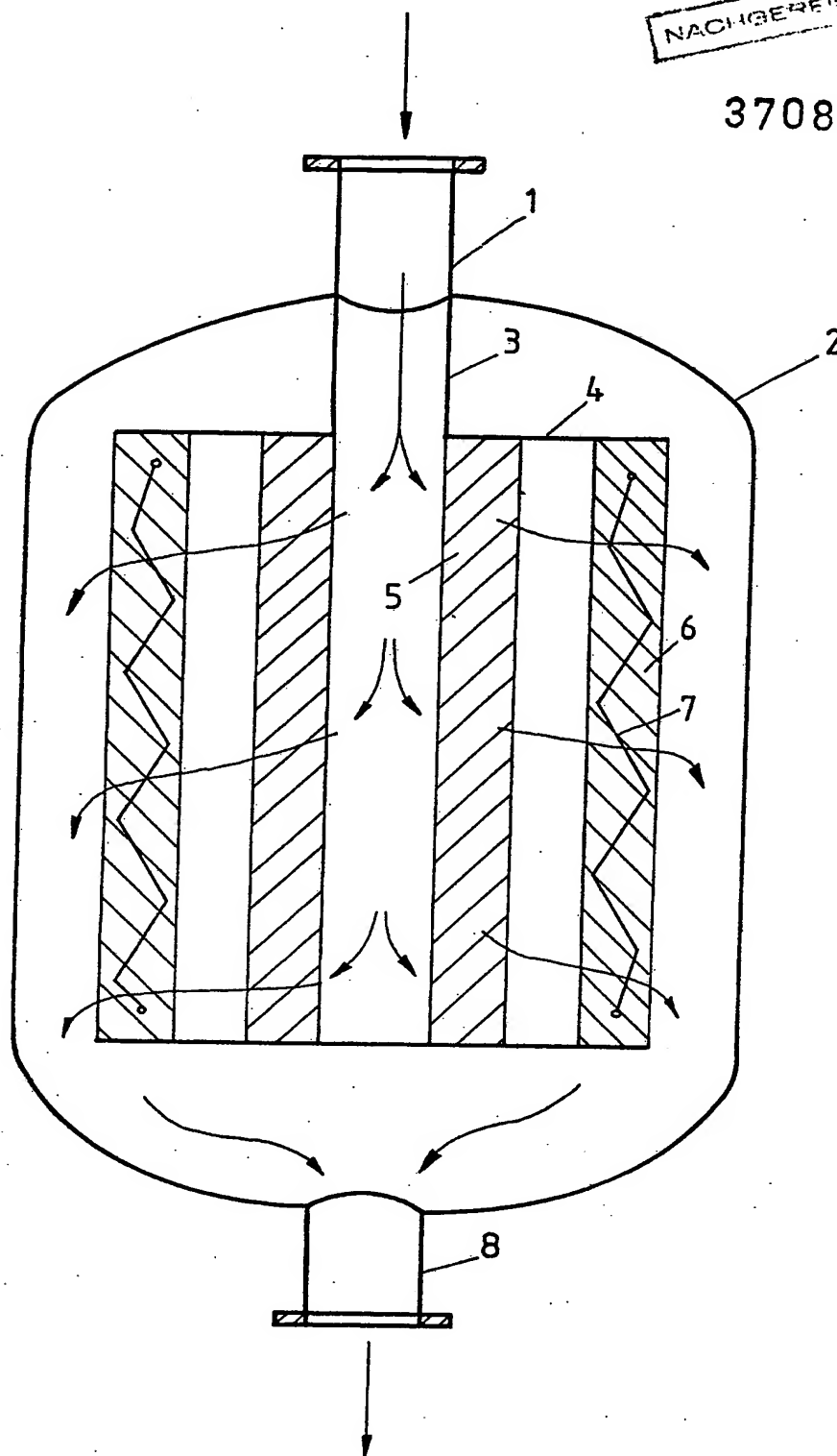


Fig. 2



3708957

NACHGEREICHT

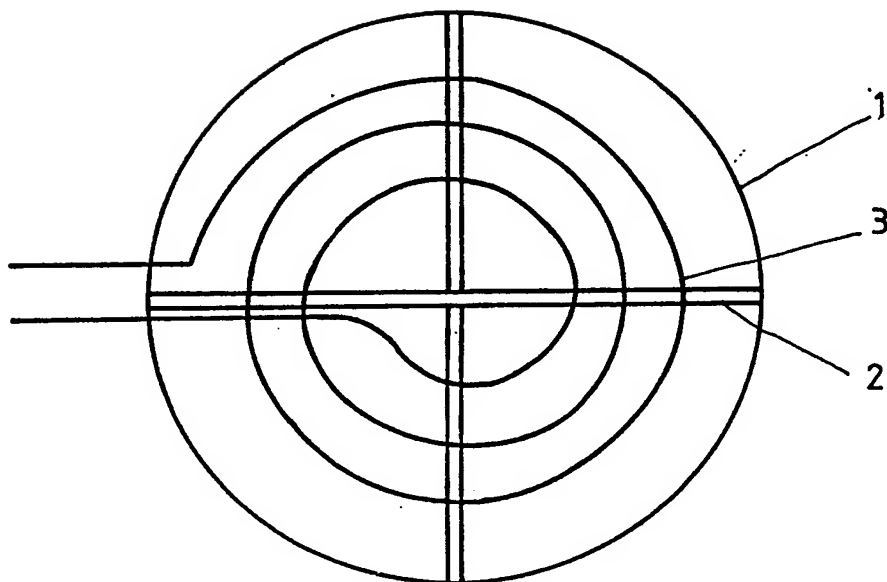


Fig. 3

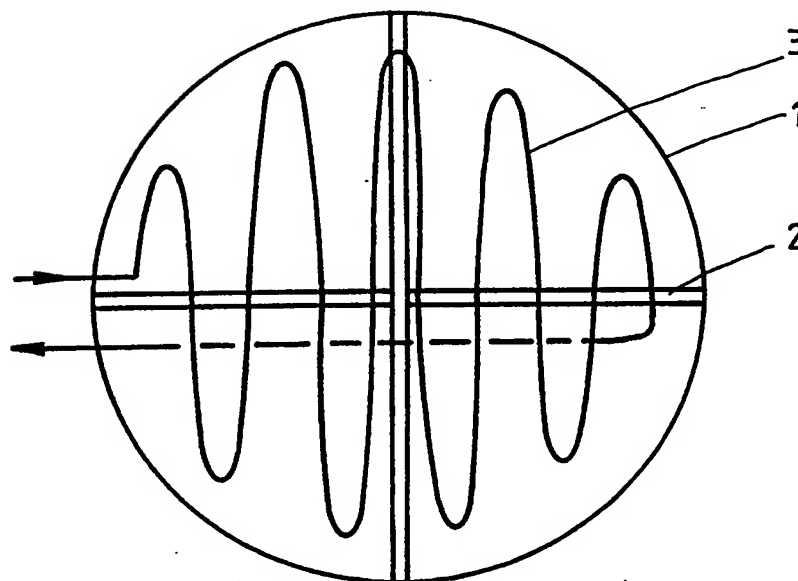


Fig. 4